



32301W090

#4
PATENT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant(s): Gunther Michael, et al.

U.S. Serial No.: 09/740,039

Group Art Unit: 1712

Filed: December 20, 2000

Examiner: To Be Assigned

For : HYDROPHOBIC SILICA

CLAIM FOR PRIORITY

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

Sir:

Under the provisions of 35 U.S.C. § 119, Applicants hereby claim the benefit of the filing date of Patent Appln. No. 199 61 933.6, filed in Germany on December 22, 1999.

In support of this priority claim, Applicant submits herewith a certified copy of the priority application.

Respectfully submitted,

SMITH, GAMBRELL & RUSSELL, LLP

By: 

Robert G. Weilacher, Reg. No. 20,531
1850 M Street, N.W., Suite 800
Washington, D.C. 20036
Telephone: (202) 659-2811
Fax: (202) 263-4329

April 13, 2001

BUNDESREPUBLIK DEUTSCHLAND



Prioritätsbescheinigung über die Einreichung einer Patentanmeldung

Aktenzeichen: 199 61 933.6

Anmeldetag: 22. Dezember 1999

Anmelder/Inhaber: Degussa-Hüls AG, Frankfurt am Main/DE

Bezeichnung: Hydrophobe Kieselsäure

IPC: C 01 B 33/18

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Patentanmeldung.

München, den 2. Oktober 2000
Deutsches Patent- und Markenamt
Der Präsident
Im Auftrag

Jerofsky

Hydrophobe Kieselsäure

Die Erfindung betrifft eine hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure, ein Verfahren zu ihrer Herstellung und ihrer Verwendung.

Es ist bekannt, hydrophile, pyrogen hergestellte Kieselsäure zu verdichten (EP 0 280 854 B1). Nachteiligerweise nimmt mit zunehmender Stampfdichte, beziehungsweise Schüttgewicht die Verdickungswirkung linear ab. Zusätzlich nimmt die Dispergierbarkeit mit zunehmender Dichte ab. Dies zeigt sich durch eine unerwünschte Stippchenbildung. Eine hydrophile, pyrogen hergestellte Kieselsäure kann daher nach der Verdichtung nur für eine begrenzte Anzahl von Einsatzzwecken verwendet werden.

Gegenstand der Erfindung ist eine hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure, welche dadurch gekennzeichnet ist, daß sie eine Stampfdichte von 55 bis 200 g/l aufweist.

Bevorzugt kann die Stampfdichte 60 bis 200 g/l betragen.

Ein weiterer Gegenstand der Erfindung ist ein Verfahren zur Herstellung der hydrophoben, pyrogen hergestellten Kieselsäure mit einem Schüttgewicht von 55 bis 200 g/l, welches dadurch gekennzeichnet ist, daß man pyrogen hergestellte Kieselsäure auf bekanntem Wege hydrophobiert und anschließend verdichtet.

Bevorzugt kann die Hydrophobierung mittels halogenfreier Silane erfolgen. Der Chlorid-Gehalt der Kieselsäure kann gleich oder unter 100 ppm, bevorzugt 10 bis 100 ppm betragen.

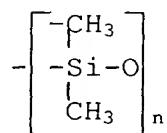
Die Verdichtung kann mittels eines Walzenverdichters erfolgen. Bevorzugt kann die Verdichtung mittels eines Preßbandfilters gemäß EP 0 280 851 B1 erfolgen.

Als hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure können zum Beispiel die Kieselsäuren:

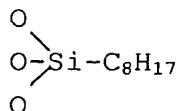
Aerosil R 812 oder Aerosil R 812S, mit der Gruppierung
-O-Si (CH₃)₃

Aerosil R 202, Aerosil MS 202, Aerosil MS 202, Aerosil R 106

oder Aerosil R 104, mit der Gruppierung



Aerosil R 805 mit der Gruppierung



verwendet werden.

Die erfindungsgemäße hydrophobe, pyrogene Kieselsäure mit einem Stampfgewicht von 55 bis 200 g/l weist die folgenden Vorteile auf:

Auf Grund der höheren Stampfdichte sind die Transportkosten deutlich niedriger.

Nach der Dispergierung liegt die erfindungsgemäße Kieselsäure in kleineren Aggregaten vor. Das heißt: Die Dispersionen sind feinteiliger, weil die erfindungsgemäße Kieselsäure besser dispergierbar ist.

Die mit der erfindungsgemäßen Kieselsäure hergestellten Dispersionen weisen einen kleineren Grindometerwert auf.

Sowohl die Transparenz, gemessen an UV-Transmission, als auch die visuelle Durchsichtigkeit der Dispersionen werden durch die Verwendung der erfindungsgemäßen Kieselsäure deutlich verbessert.

Die Dispersionen, die die erfindungsgemäße Kieselsäuren enthalten, zeigen eine deutlich erhöhte Stabilität, weil die Sedimentationsneigung deutlich geringer ist.

Ein weiterer Vorteil der erfindungsgemäßen Kieselsäure ist die reduzierte Staubbildung bei der Einarbeitung und die deutlich herabgesetzte Einarbeitungs- beziehungsweise Benetzungszeit in zum Beispiel flüssige Systemen.

Die Hydrophobie ist bei der erfindungsgemäßen Kieselsäure gegenüber der hydrophoben, pyrogenen Kieselsäure mit niedrigerem

Schüttgewicht unverändert. Auch die Verdickungswirkung ist unverändert.

Beispiel 1

Es werden verschiedene hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäuren untersucht, wobei verschiedene Verdichtungszustände gegenübergestellt werden.

Es bedeuten:

lose = pulverförmige, unveränderte Kieselsäure

CF = mit Carterfilter verdichtete Kieselsäure

VV 60 = auf eine Stampfdichte von ca. 60 g/l verdichtete Kieselsäure

VV 90 = auf eine Stampfdichte von ca. 90 g/l verdichtete Kieselsäure

Untersucht werden die Aerosil-Typen R 202, US 202, US 204, R 812, R812S und R 805. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 1 aufgeführt.

Die Methanolbenetzbarkeit zeigt Figur 3.

Der Verdichtungsgrad hat praktisch keinen nennenswerten Einfluß auf die Hydrophobie, beurteilt nach der Methanolbenetzbarkeit nach Corning Glass. Auch die Viskosität zeigt keine deutliche systematische Abhängigkeit von der Stampfdichte. Insbesondere bei R 812 wird die Dispergierbarkeit mit steigender Dichte besser. R 812 S, das mehr SiOH-Gruppen enthält als R 812, zeigt obiges Phänomen weniger deutlich.

US 202 und US 204 sind rheologisch gut miteinander vergleichbar und AEROSIL R 202 unterlegen.

Die verdichteten Varianten zeigen überraschender Weise insbesondere bei R 812, R 202 und US 202/4 eine um bis zur Hälfte verkürzte Einarbeitungszeit. Ferner zeigen die verdichteten Kieselsäuren eine geringere Staubentwicklung.

PA	Prüfmethoden	4						444711					
		AE R 02	AE R 02	444703	444704	444705	444706	AE R 05	AE R 05	444708	444709	444710	AE R 812
	CF	CF	W60	W90	CF	W60	W90	CF	W60	AE R 805	AE R 805	AE R 812	CF
0330	Viskosität Epoxid v. Hä	459	456	382	430	190	184	185	178				
0335	Viskosität Epoxid n. Hä	54,4	54,7	49,4	52,8	42	41,7	39	43				
0340	Verdickungswirkung									11,7	13,3	11,5	
0410	Grindometerwert									127	102	92	
0420	Mechanikbelastbarkeit												
0701	Stampfdichte	45	50	51	75	44	62	55	68	45	44	50	
0920	Agglomerationfestigkeit	11	20	18		15	15	15	20				
0930	Steinabstand Handr.	0	24	4	27	0	36	7	19	0	0	0	
0955	Effektivität	25,8	27,4	20,3	26,6	23,5	26,0	23,6	23,6	166	185	169	
0965	Effektivität (UT)	28,0	29,0	22,6	29,5	27,1	28,4	27,0	28,8	197	213	209	
0975	Sediment (Effektivität)	15	15	15	8	10	15	10	5	13	15	8	
PA	Prüfmethoden	444712	444713	444714	444715	444716	444717	444718	444719	444720	444721	444722	444723
		AE R 812	AE R 812S	AE R 812S	AE R 812S	AE R 812S	US 202	US 202	US 204	US 204	US 204	US 204	US 204
		W90	lose	CF	W60	W90	lose	CF	W60	lose	CF	W60	W90
0330	Viskosität Epoxid v. Hä						350,4	377,6	380,8	379,2	350,4	358,4	368
0335	Viskosität Epoxid n. Hä						50,7	45,9	45,3	49,9	47	52,6	50,7
0340	Verdickungswirkung	11,1	17,3	18,2	17								
0410	Grindometerwert	77	93	110	110	100							
0420	Mechanikbelastbarkeit												
0701	Stampfdichte	73	49	50	58	75	39	50	67	44	45	57	71
0920	Agglomerationfestigkeit	22				28		10	15			16	23
0930	Steinabstand Handr.	12	0	0	0	4	0	27	36	0	0	3	20
0955	Effektivität	159	168	169	187	209	320	304	320	186	193	192	201
0965	Effektivität (UT)	225	201	200	216	235	336	327	346	223	225	225	230
0975	Sediment (Effektivität)	5	8	8	3	0	15	10	3	10	10	10	10

Rhologiische Prüfung:

Polymer: Araldit M

Thixmittel: R 202 und R 812

Zusatz: -

5 Probe A R 812 10 kg 2-10123

Herstellungsdatum der Probe: 24.02.1994

Spindel:5

Lag. Zeit in Tagen	5 Upm [mPa*s]	50 Upm [mPa*s]	T.-I.
0	16600 80-85 μ	4460	3,72

Probe A R 812 15 kg 1,0/8 min

Herstellungsdatum der Probe: 24.02.1994

Spindel:5

Lag. Zeit in Tagen	5 Upm [mPa*s]	50 Upm [mPa*s]	T.-I.
0	15100 50-60 μ	4060	3,72

10

Probe A R 812 20 kg 0,6/14 min

Herstellungsdatum der Probe: 24.02.1994

Spindel:5

Lag. Zeit in Tagen	5 Upm [mPa*s]	50 Upm [mPa*s]	T.-I.
0	15100 50-60 μ	4020	3,73

Die Verdichtung kann eine Art Vordispersierung darstellen.

15 Entsprechend erhöhen sich mit der Stampfdichte die Effektivitätswerte, das heißt die effektiv vorliegenden Teilchen in der Ethanoldispersion werden kleiner und die verdichteten Proben setzen sich deutlich weniger ab.

Entsprechend ist in Araldit der Grindometerwert der verdichteten Proben günstiger. Da die größeren Teilchen aber maßgeblich die Verdickungswirkung beeinflussen, geht diese mit der Verdichtung geringfügig zurück.

5 Der Graphik mit den Effektivitätswerten kann man entnehmen, daß die hoch verdichtete AEROSIL R 812-Probe zwar noch mit dem Ultra-Turrax (0965), aber nicht mehr mit dem Dissolver (0955) aufgeschlossen werden kann. Aufgrund der geringeren Oberfläche von AEROSIL R 202 (und der damit prinzipiell 10 besseren Dispergierbarkeit) tritt dieses Phänomen bei AEROSIL R 202 kaum auf.

Mit steigender Verdichtung werden die effektiv vorliegenden Teilchen in einer Ethanoldispersion also kleiner und die Streuung im 90-Grad-Winkel aufgrund der Rayleigh-Streuung 15 größer. Die Totalstreuung (über alle Winkel) wird aber kleiner, die Proben werden für das Auge deutlich transparenter, was auch die UV-Transmissionsspektren belegen.

Die Verdichtung hat keinen Einfluß auf die Hydrophbie, die mit der des Standardmusters jeweils weitgehend übereinstimmt.

Beispiel 3

Untersuchung des Einflusses einer höheren Verdichtung auf anwendungstechnische Eigenschaften

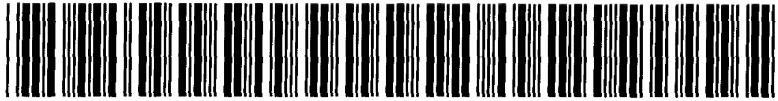
Patentansprüche

1. Hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure, dadurch gekennzeichnet, daß sie eine Stampfdichte von 55 bis 200 g/l aufweist.
- 5 2. Verfahren zur Herstellung der hydrophoben, pyrogen hergestellten Kieselsäure gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß man pyrogen hergestellte Kieselsäure auf bekanntem Wege hydrophobiert und anschließend verdichtet.
- 10 3. Verwendung der hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure gemäß Anspruch 1 zur Herstellung von Dispersionen.

Zusammenfassung

Hydrophobe Kieselsäure

Hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure mit einer Stampfdichte von 60 bis 200 g/l wird hergestellt, indem man 5 pyrogen hergestellte Kieselsäure hydrophobiert und anschließend verdichtet. Sie kann zur Herstellung von Dispersionsen verwendet werden.



Creation date: 10-14-2003

Indexing Officer: STANOH - SIMON TANOH

Team: OIPEBackFileIndexing

Dossier: 09740039

Legal Date: 05-29-2001

No.	Doccode	Number of pages
1	CTMS	1

Total number of pages: 1

Remarks:

Order of re-scan issued on

BACKFILE DOCUMENT INDEX SHEET

5/29/01



A DOCPHOENIX

APPL PARTS

IMIS	_____
Internal Misc. Paper	_____
LET.	_____

Misc. Incoming Letter
371P
PCT Papers in a 371 Application

A...
Amendment Including Elections

ABST
Abstract

ADS
Application Data Sheet

AF/D
Affidavit or Exhibit Received

APPENDIX
Appendix

ARTIFACT
Artifact

BIB
Bib Data Sheet

CLM
Claim

COMPUTER
Computer Program Listing

CRFL
All CRF Papers for Backfile

DIST
Terminal Disclaimer Filed

DRW
Drawings

FOR
Foreign Reference

FRPR
Foreign Priority Papers

IDS
IDS Including 1449

NPL	_____	CTNF	_____
Non-Patent Literature	_____	Count Non-Final	_____
OATH	_____	CTRS	_____
Oath or Declaration	_____	Count Restriction	_____
PET.	_____	EXIN	_____
Petition	_____	Examiner Interview	_____
RETRMAIL	_____	M903	_____
Mail Returned by USPS	_____	DO/EO Acceptance	_____
SEQLIST	_____	M905	_____
Sequence Listing	_____	DO/EO Missing Requirement	_____
SPEC	_____	NFDR	_____
Specification	_____	Formal Drawing Required	_____
SPEC NO	_____	NOA	_____
Specification Not in English	_____	Notice of Allowance	_____
TRNA	_____	PETDEC	_____
Transmittal New Application	_____	Petition Decision	_____

OUTGOING

CTMS	_____
Misc. Office Action	_____
1449	_____
Signed 1449	_____
892	_____
ABN	_____
Abandonment	_____
APDEC	_____
Board of Appeals Decision	_____
APEA	_____
Examiner Answer	_____
CTAV	_____
Count Advisory Action	_____
CTEQ	_____
Count Ex parte Quayle	_____
CTFR	_____
Count Final Rejection	_____

INCOMING

AP.B	_____
Appeal Brief	_____
C.AD	_____
Change of Address	_____
N/AP	_____
Notice of Appeal	_____
PA..	_____
Change in Power of Attorney	_____
REM	_____
Applicant Remarks in Amendment	_____
XT/	_____
Extension of Time filed separate	_____

File Wrapper

FWCLM	_____
File Wrapper Claim	_____
IIFW	_____
File Wrapper Issue Information	_____
SRFW	_____
File Wrapper Search Info	_____

Internal	ECBOX
SRNT	Evidence Copy Box Identification
Examiner Search Notes	_____
CLMPTO	WCLM
PTO Prepared Complete Claim Set	Claim Worksheet
	WFEE
	Fee Worksheet



UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

COMMISSIONER FOR PATENTS
UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE
WASHINGTON, D.C. 20231
www.uspto.gov

APPLICATION NUMBER	FILING/RECEIPT DATE	FIRST NAMED APPLICANT	ATTORNEY DOCKET NUMBER
09/740,039	12/20/2000	Gunther Michael	32301W090

CONFIRMATION NO. 6197

FORMALITIES LETTER



OC00000006123330

Smith, Gambrell & Russell, LLP
Beveridge, DeGrandi, Weilacher & Young
Intellectual Property Group
1850 M Street, N.W. (Suite 800)
Washington, DC 20036

Date Mailed: 05/29/2001

NOTICE OF INCOMPLETE REPLY (NONPROVISIONAL)

Filing Date Granted

The U.S. Patent and Trademark Office has received your reply on to the Notice mailed and it has been entered into the nonprovisional application. The reply, however, does not include the following items required in the Notice.

The period of reply remains as set forth in the Notice. You may, however, obtain EXTENSIONS OF TIME under the provisions of 37 CFR 1.136 (a) accompanied by the appropriate fee (37 CFR 1.17(a)).

A complete reply must be timely filed to prevent ABANDONMENT of the above-identified application.

- A substitute specification in compliance with 37 CFR 1.52 because:
 - Papers contain improper margins. *Each sheet must have a left margin of at least 2.5 cm (1") and top, bottom and right margins of at least 2.0 cm (3/4")*

*A copy of this notice **MUST** be returned with the reply.*

Customer Service Center
Initial Patent Examination Division (703) 308-1202

PART 3 - OFFICE COPY